

PCT/JP2004/006468

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

07. 5. 2004

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2003年 5月 8日

出 願 番 号  
Application Number: 特願2003-130170  
[ST. 10/C]: [JP2003-130170]

出 願 人  
Applicant(s): 大日本インキ化学工業株式会社

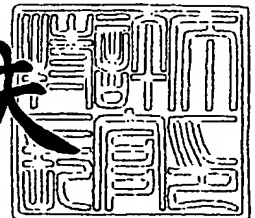
|                   |     |
|-------------------|-----|
| REC'D 01 JUL 2004 |     |
| WIPO              | PCT |

PRIORITY DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2004年 6月10日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



出証番号 出証特2004-3050076

【書類名】 特許願

【整理番号】 PX030060

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H01M 8/02

【発明者】

    【住所又は居所】 大阪府泉南郡熊取町山の手台 1-6-24

    【氏名】 井筒 齊

【発明者】

    【住所又は居所】 大阪府和泉市いぶき野 3-5-5-502

    【氏名】 原田 哲哉

【特許出願人】

    【識別番号】 000002886

    【氏名又は名称】 大日本インキ化学工業株式会社

【代理人】

    【識別番号】 100088764

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 高橋 勝利

    【電話番号】 03-5203-7757

【手数料の表示】

    【予納台帳番号】 008257

    【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

    【物件名】 明細書 1

    【物件名】 図面 1

    【物件名】 要約書 1

    【包括委任状番号】 0214178

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 燃料電池用セパレータの製造方法及び燃料電池

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 導電性粉粒体と熱可塑性樹脂繊維とを用いて該導電性粉粒体を担持した不織布を形成し、次いで該不織布を成形することを特徴とする燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項 2】 導電性粉粒体と熱可塑性樹脂繊維と熱可塑性樹脂粉粒体とを用いて該導電性粉粒体及び熱可塑性樹脂粉粒体を担持した不織布を形成し、次いで該不織布を成形することを特徴とする燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項 3】 導電性粉粒体と熱可塑性樹脂繊維と導電性繊維とを用いて該導電性粉粒体を担持した不織布を形成し、次いで該不織布を成形することを特徴とする燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項 4】 前記導電性繊維が、曲線状のピッチ系炭素繊維である請求項 3 記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項 5】 前記熱可塑性樹脂繊維が、ポリアリーレンスルフィド樹脂繊維である請求項 1～4 のいずれか 1 項に記載の燃料電池セパレータの製造方法。

【請求項 6】 前記不織布を熱可塑性樹脂の熔融温度以上に加熱、加圧することによりシート形状物を形成し、次いで金型を用いて、該シート形状物を燃料電池用セパレータの形状に賦形する請求項 1～5 のいずれか 1 項に記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項 7】 前記燃料電池用セパレータが、リブ付き燃料電池用セパレータである請求項 1～6 のいずれか 1 項に記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項 8】 電解質膜の両面に電極が配置され、該電極が配置された電解質が燃料電池セパレータで挟持された積層構造を有してなる燃料電池において、該燃料電池用セパレータが、導電性粉粒体と熱可塑性樹脂繊維とを用いて該導電性粉粒体を担持した不織布を形成し、次いで該不織布を成形することにより得られるものであることを特徴とする燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

**【発明の属する技術分野】**

本発明は、電気自動車用電源、ポータブル電源、非常用電源等に用いる磷酸型燃料電池、固体高分子型燃料電池等の燃料電池に用いる燃料電池用セパレータの製造方法および燃料電池に関する。

**【0002】****【従来の技術】**

水素と酸素とが反応する時の化学エネルギーを電力として取り出す所謂燃料電池は、電気自動車等種々の用途に使用されつつある。この燃料電池は、燃料、電解質膜及びセパレータからなる基本構成単位である単セルを直列に積層することにより実用的な電圧を確保するものである。かかるセパレータとしては、導電性であるとともに非通気性（ガスシール性）であることが求められている。また、近年、電気自動車への用途から燃料電池の小型化が要求され、それに伴いセパレータの薄肉化も求められている。

**【0003】**

これまで燃料電池のセパレータとしては、一般的にはカーボン粉末を焼成した板材にガスの通路を切削加工した、所謂カーボン粉末焼結型板材が用いられているが、ガスシール性に劣る他、切削加工や取付作業で欠損し易いため、薄肉化にも限界があり、またカーボン粉末を焼成した板材にガスの通路を切削加工することが必要となり工程が煩雑であった。

**【0004】**

そこで従来より、ガスシール性と薄肉化を実現すべく、アクリル繊維などの焼成により炭素繊維となる前駆体繊維とパルプとの抄紙シートに、炭素質粉末懸濁有機高分子物質溶液を含浸し、さらには塗工したのち、これらを複数枚貼り合わせて、加熱安定化处理、加熱焼成処理を施す方法が提案されている（例えば特許文献1参照）。

**【0005】**

しかし、上記のセパレータは最終工程で焼成するため、この炭化工程での有機物に起因する微少なピンホールが発生するため、充分なる非通気性を得ようとすれば肉厚なものとならざるを得ないものであった。また、セパレータ自体が脆い

ため、自動車などの移動体への搭載、或いは持ち運び等に難があった。さらに、抄紙シートに、炭素質粉末懸濁有機高分子物質溶液を含浸し、塗工し、貼り合わせ、加熱安定化処理を行い、次いで加熱焼成処理を行うといった煩雑な工程を要する。

#### 【0006】

また、ガスシール性及び導電性が優れる燃料電池用セパレータとして、導電性繊維を合成繊維で結着固化させたシート状形状物からなるものが提案されている（例えば特許文献2参照）。しかし導電性繊維として炭素繊維を用いると、機械的性質は良いが、多量に添加し導電性を高めるようするとガスシール性が低下するという問題があった。

#### 【0007】

さらに、非炭素質熱可塑性樹脂と導電剤とを含む樹脂組成物で形成されたシートをスタンピング成形してセパレータを製造する方法が提案されている（例えば参考文献3参照）が、この方法は導電剤と熱可塑性樹脂とを加熱混練して押出成形等の方法でシートを形成するものである。しかしながら、この方法では、導電剤を熱可塑性樹脂に均一に分散させ、熱可塑性樹脂と導電剤との密着性を良くするためには、強い剪断力と圧力を長時間かけることが必要であるが、この場合導電性が低下するという問題がある。

#### 【0008】

##### 【特許文献1】

特開平5-307967号公報

##### 【特許文献2】

特開2000-133281号公報

##### 【特許文献3】

特開2001-122677号公報

#### 【0009】

##### 【発明が解決しようとする課題】

本発明が解決しようとする課題は、ガスシール性と導電性が優れると共に、従来になく薄肉化が可能でかつ可撓性に優れた燃料電池セパレータが得られ、かつ

工程上の煩雑さが少なく生産性に優れた燃料電池用セパレータの製造方法、及び該セパレータを用いてなる燃料電池を提供することにある。

#### 【0010】

##### 【課題を解決するための手段】

本発明者等は、上記課題を解決すべく鋭意検討を重ねた結果、導電性粉粒体と熱可塑性樹脂繊維とを用いて、一旦導電性粉粒体を担持した不織布を形成し、該不織布を成形することにより、生産性に優れ、低コストでかつ導電性、ガスシール性、薄肉化、可撓性を満足するセパレータが得られ、このセパレータを用いることにより省スペース化に適合し、かつ自動車搭載、持ち運びに耐えうる小型燃料電池を提供できることを見出し、本発明を完成するに至った。

#### 【0011】

即ち、本発明は、導電性粉粒体と熱可塑性樹脂繊維とを用いて該導電性粉粒体を担持した不織布を形成し、次いで該不織布を成形することを特徴とする燃料電池用セパレータの製造方法を提供するものである。

また本発明は、導電性粉粒体と熱可塑性樹脂繊維と熱可塑性樹脂粉粒体とを用いて該導電性粉粒体及び熱可塑性樹脂粉粒体を担持した不織布を形成し、次いで該不織布を成形することを特徴とする燃料電池用セパレータの製造方法を提供するものである。さらに本発明は、導電性粉粒体と熱可塑性樹脂繊維と導電性繊維とを用いて該導電性粉粒体を担持した不織布を形成し、次いで該不織布を成形することを特徴とする燃料電池用セパレータの製造方法を提供するものである。

また本発明は、電解質膜の両面に電極が配置され、該電極が配置された電解質が燃料電池セパレータで挟持された積層構造を有してなる燃料電池において、該燃料電池用セパレータが、導電性粉粒体と熱可塑性樹脂繊維とを用いて該導電性粉粒体を担持した不織布を形成し、次いで該不織布を成形することにより得られるものであることを特徴とする燃料電池を提供するものである。

#### 【0012】

##### 【発明の実施の形態】

以下本発明を詳しく説明する。

本発明で用いる導電性粉粒体としては、例えば、炭素材料、金属、金属化合物

などの粉粒体等を挙げることができ、これらの導電性粉粒体の1種あるいは2種以上を組み合わせ使用できる。また、本発明の目的を逸脱しない範囲内で該導電性粉粒体に非導電性粉粒体あるいは半導電性粉粒体を混合して使用してもよい。

#### 【0013】

非導電性粉粒体としては、例えば炭酸カルシウム、シリカ、カオリン、クレー、タルク、マイカ、ガラスフレーク、ガラスビーズ、ガラスパウダー、ハイドロタルサイト、ウオラストナイト等が挙げられる。

半導電性粉粒体としては、例えば酸化亜鉛、酸化錫、酸化チタン等が挙げられる。

該導電性粉粒体の大きさは、熱可塑性樹脂繊維に担持することができる限り特に制限されないが、導電性と機械的性質の点で平均粒子径が $1 \sim 800 \mu$ の範囲のものが好ましい。

#### 【0014】

前記の炭素材料としては、例えば、人造黒鉛、天然黒鉛、ガラス状カーボン、カーボンプラック、アセチレンプラック、ケッチェンプラックなどが挙げられる。これらの炭素材料を単独で、もしくは2種以上を組み合わせ用いることができる。これらの炭素材料の粉粒体の形状に特に制限はなく、箔状、鱗片状、板状、針状、球状、無定形等の何れであってもよい。また、黒鉛を化学処理して得られる膨張黒鉛も使用できる。導電性を考慮すれば、より少量で高度の導電性を有するセパレータが得られるという点で、人造黒鉛、天然黒鉛、膨張黒鉛が好ましい。

#### 【0015】

また、前記の金属、金属化合物としては、例えば、アルミニウム、亜鉛、鉄、銅、金、ステンレス、パラジウム、チタンなど、更には、チタン、ジルコニウム、ハフニウム等のホウ化物などが挙げられる。これらの金属、金属化合物を単独で、もしくは2種以上を組み合わせ用いることができる。これらの金属、金属化合物の粉粒体の形状に特に制限はなく、箔状、鱗片状、板状、針状、球状、無定形等の何れであってもよい。更に、これらの金属、金属化合物が非導電性ある

いは半導電性材料の粉粒体表面に被覆されたものも使用可能である。

#### 【0016】

また本発明の燃料電池用セパレータの製造方法は、前記導電性粉粒体に熱可塑性樹脂粉粒体を併用するものである。導電性粉粒体と熱可塑性樹脂粉粒体、特に熱可塑性樹脂繊維と同種の熱可塑性樹脂粉粒体とを担持した熱可塑性樹脂繊維を用いることにより、セパレータ中の導電性粉粒体の分散性を一層向上させることができる。この場合、導電性粉粒体及び熱可塑性樹脂粉粒体が熱可塑性樹脂繊維に担持した不織布が得られる。熱可塑性樹脂粉粒体は、前記熱可塑性樹脂繊維と同種の熱可塑性樹脂を用いるものであるが、本発明の範囲を逸脱しない範囲で、前記熱可塑性樹脂繊維とは異なる熱可塑性樹脂の粉粒体を使用することができる。

#### 【0017】

前記熱可塑性樹脂繊維としては、各種の熱可塑性樹脂からなる繊維が使用される。かかる熱可塑性樹脂としては、例えばポリエチレン、ポリプロピレン、シクロオレフィンポリマー、ポリスチレン、シンジオタクティックポリスチレン、ポリ塩化ビニル、ABS樹脂、ポリアミド樹脂、ポリアセタール、ポリカーボネート、ポリフェニレンエーテル、変性ポリフェニレンエーテル、ポリエチレンテレフタレート、ポリトリメチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリシクロヘキシレンテレフタレート、ポリフェニレンスルフィド、ポリチオエーテルサルホン、ポリエーテルエーテルケトン、ポリエーテルニトリル、ポリアリレート、ポリサルホン、ポリエーテルサルホン、ポリエーテルイミド、ポリアミドイミド、熱可塑性ポリイミド、液晶ポリマー、ポリテトラフルオロエチレン共重合体、ポリビニリデンフルオライドなどのフッ素樹脂、全芳香族ポリエステル、半芳香族ポリエステル、ポリ乳酸、ポリエステル・ポリエステルエラストマー、ポリエステル・ポリエーテルエラストマーなどの熱可塑性エラストマーなどの樹脂が挙げられる。熱可塑性樹脂樹脂は、単独でもしくは2種以上を組み合わせ用いることができる。かかる熱可塑性樹脂からなる熱可塑性樹脂繊維は、これらのうちから各燃料電池の動作温度に対する耐熱性や耐久性により、適宜選択される。



## 【0018】

例えば、燐酸型燃料電池に用いる場合においては、耐食性、耐熱性の点から熱可塑性樹脂樹脂はポリフェニレンスルフィド樹脂が好ましく、また固体高分子型燃料電池に用いる場合においては、耐食性、機械的強度の点からポリフェニレンスルフィド樹脂やポリプロピレンが好ましい。後者の場合、ポリフェニレンスルフィド樹脂はその融点以上に加熱、加圧し賦型する時、樹脂溶融物の導電性粉粒体への親和性が大きく、該導電性粉粒体の均一分散を促し、セパレータの導電性や機械的強度を高めるため、特に好ましい。

## 【0019】

本発明の熱可塑性樹脂繊維は前記の導電性粉粒体を担持することができれば、その形状に特に制限はないが、一般的には、 $0.01\mu\sim 1\text{mm}$ の範囲の直径を有する繊維が使用される。

## 【0020】

また本発明の燃料電池用セパレータの製造方法は、上記熱可塑性樹脂繊維に導電性繊維を併用するものである。導電性繊維を併用することにより、導電性粉粒体を担持させつつ、本発明の燃料電池用セパレータの導電性及び機械的性質をより向上させることができる。この場合、熱可塑性樹脂繊維及び導電性繊維に導電性粉粒体を担持した不織布が得られるものである。

## 【0021】

かかる導電性繊維としては、例えばステンレスなどの各種金属繊維、アクリル繊維を原料とするPAN系炭素繊維、石炭や石油ピッチ、もしくはナフタレン系ピッチを原料とするピッチ系炭素繊維、フェノール樹脂を原料とする炭素繊維、レーヨン系炭素繊維、気相成長法炭素繊維などの各種炭素繊維、ポリアセチレン、ポリフェニレン、ポリピロール、ポリチオフェン、ポリアニリン、ポリアセンなどの各種導電性高分子の繊維、無機または有機繊維に金属を蒸着またはメッキした繊維などが挙げられる。これらを単独で、もしくは2種以上組み合わせて用いることができる。これらのなかで、耐食性の点から炭素繊維が好ましく、さらに導電性を考慮するとピッチ系炭素繊維が特に好ましい。

## 【0022】

このピッチ系炭素繊維のなかでも、絡み合いが均一で導電性粉粒体を担持しやすい点から、曲線状のピッチ系炭素繊維が好ましい。ここで曲線状のピッチ系炭素繊維とは、一本の繊維のアスペクト比が50以上で直線状炭素繊維に比べて比容積が大きいもの、詳細にはアスペクト比を500に換算して比容積が $9 \text{ cm}^3/\text{g}$ 以上となるものを指す。かかる曲線状のピッチ系炭素繊維の製法としては、例えば渦流法等が挙げられる。かかる曲線状のピッチ系炭素繊維の直径は、導電性の点で小さい程好ましく、具体的には直径 $1 \mu \sim 20 \mu$ の範囲のものが好ましい。また、導電性粉粒体を担持し、導電性に優れるという点から、アスペクト比が10以上のものが50重量%以上あることが好ましい。

#### 【0023】

本発明は、導電性粉粒体を担持した不織布を該熱可塑性樹脂繊維の溶融温度以上の温度に加熱し、加圧することにより成形し燃料電池用セパレータを得るものである。

#### 【0024】

本発明に使用する不織布とは、繊維同士を化学的方法、機械的方法、又はそれらの組み合わせにより結合や絡み合わせを行った構造物をいうものである。

また「導電性粉粒体を担持した不織布」とは、繊維の結合や絡み合わせにより形成された不織布の繊維の間に形成される細孔に導電性粉粒体が保持されているか、又は不織布の表面に導電性粉粒体が付着した構造を有する不織布を意味する。

#### 【0025】

不織布に導電性粉粒体を担持させるには、(1)導電性粉粒体と熱可塑性樹脂繊維を用いて同時に不織布を形成する方法、(2)一旦導電性粉粒体と熱可塑性樹脂繊維とを用いて導電性粉粒体が担持した熱可塑性樹脂繊維を作製し、かかる繊維を用いて不織布を形成する方法、(3)一旦熱可塑性樹脂繊維を用いて不織布を形成した後、該不織布に導電性粉粒体を付着させる方法等が挙げられる。これらのうち、生産性の点から(1)の方法が好ましい。

#### 【0026】

前記(1)の方法として、具体的にはウェブ形成の点からは乾式法が挙げられ、

ウェブ結合の点からはサーマルボンド法、ニードルパンチ法、気流中でのジェット法等が挙げられる。

#### 【0027】

本発明で用いる不織布は、前記導電性粉粒体及び前記熱可塑性樹脂繊維を用いて公知の方法によって得ることができる。かかる公知の方法としては、大別して水を使う湿式法、水を使わない乾式法が挙げられる。湿式法は繊維とパルプまたは接着繊維を抄紙方式でシートにする方法である。具体的には接着剤で結合するケミカルボンド法、自己接着または接着繊維で結合するサーマルボンド法等の各方法がある。乾式法はさらに狭義の乾式法とスパンボンド法に分けられる。狭義の乾式法には、繊維をカード方式、エアレイ方式などでシート化し、上記ケミカルボンド法、サーマルボンド法、ニードルパンチ法、ウォーターパンチ法等により接着剤または接着繊維で接着する方法等がある。またスパンボンド法には、紡糸直結で主に自己接合で結合する普通紡糸法、ポリマーを高圧で押し出すとともに熱風で吹き飛ばし極細繊維シート化するメルトブロー法、ポリマーを溶剤で溶解し高圧で紡糸するフラッシュ紡糸法等の方法がある。

本発明に使用する不織布は上記いずれの方法で作製されたものでも用いることができる。

#### 【0028】

本発明で用いる不織布の厚さは、目的のセパレータの形状に合わせて、単独あるいは複数を重ね合わせ使用できるので、特に制限されるものではない。

#### 【0029】

本発明の製造方法は、導電性粉粒体と熱可塑性樹脂繊維とを用いて導電性粉粒体を担持した不織布を形成し、該不織布を該熱可塑性樹脂の熔融温度以上に加熱、加圧して成形するものである。

かかる成形の方法としては、従来から実施されているバッチ式あるいは連続式のプレス成形、スタンパブル成形等が挙げられる。この場合ダブルベルト方式を利用すると、生産性が高くなるので好ましい。具体的には、例えば、(1)第1段階で不織布を熱可塑性樹脂の熔融温度以上に加熱、加圧して、熱可塑性樹脂が溶解したシート形状物にし、第2段階で目的とする少なくとも片面にガス流路を有

するセパレータ形状に金型を用いて賦形する方法、(2)不織布を、高温金型を用いて熱可塑性樹脂の溶融温度以上に加熱、加圧し賦形する方法が挙げられる。特に、(1)の方法では、加熱されたシート形状物を、熱可塑性樹脂が溶融あるいは軟化した状態で次工程に供給することで、金型内で賦形しながら冷却することになり、成形サイクルが大幅に短縮され生産性が高く好ましい方法である。

#### 【0030】

また、成形する際、前記不織布に該不織布を構成する熱可塑性樹脂繊維と同種あるいは異種の熱可塑性樹脂シート又は熱可塑性樹脂フィルム（以下熱可塑性樹脂シート等という）を重ねあわせて用いることが好ましい。不織布に重ね合わされる熱可塑性樹脂シート等は、溶融による流動が少なく、連続層を保持しやすくなるため、得られる成形品のガスシール性やセパレータ表面の平滑性が良くなる。

#### 【0031】

前記熱可塑性樹脂繊維と同種の熱可塑性樹脂のシート又はフィルムを用いると、不織布との一体化が容易になるので好ましい。

#### 【0032】

リップ付セパレータの場合は、あらかじめガス流路に相当する溝を除去した熱可塑性樹脂シート等に不織布を重ね合わせて一体化することにより得ることができる。

#### 【0033】

不織布に熱可塑性樹脂のシート又はフィルムを重ねて熱可塑性樹脂の溶融温度以上に加熱する方法としては、熱可塑性樹脂シート等を、前記不織布と同様に、賦形前あるいは賦形時に、熱可塑性樹脂の溶融温度以上に加熱する方法や、不織布を充分加熱しておき、該熱可塑性樹脂シート等を重ね合わせた時、不織布の熱によって熱可塑性樹脂シート等を構成する熱可塑性樹脂を溶融温度以上にする方法が挙げられる。

#### 【0034】

該不織布を構成する熱可塑性樹脂繊維と同種の熱可塑性樹脂シート等の性状は、特に制限されるものではなく、無延伸シート又はフィルムであっても一軸又は

二軸延伸シート又はフィルムであってもよいが、不織布との加熱加圧時における作業性、及びセパレータ中の導電性粉粒体の分散性が良好となる点で、無延伸シート又はフィルムであることが好ましい。

#### 【0035】

本発明の燃料電池用セパレータの製造方法は、導電性粉粒体を熱可塑性樹脂マトリックスに高密度に均一に分散させることができるので、導電性粉粒体同士の接触点を充分確保すると共に、熱可塑性樹脂の連続層を形成することが可能となる。その結果、高度な導電性とガスシール性を有する燃料電池用セパレータが得られる。

#### 【0036】

本発明で得られるセパレータの厚さ方向の体積抵抗率は  $200\text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$  以下であることが好ましく、 $100\text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$  以下であることが特に好ましい。体積抵抗率が  $200\text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$  を超える場合は導電性能に劣るものとなる。

#### 【0037】

またセパレータの厚さは、薄肉で小型電池を得る点で、 $0.02 \sim 5.0\text{ mm}$  が好ましく、特に  $0.1 \sim 3.0\text{ mm}$  の範囲が好ましい。

#### 【0038】

本発明で得られるセパレータのガス透過率は  $10^{-3}\text{ cm}^3/\text{sec} \cdot \text{cm}^2 \cdot \text{atm}$  以下なる範囲が好ましい。

#### 【0039】

上記で得られるセパレータは、燃料電池の基本構成単位、即ち単セルのみから構成される燃料電池に使用できるのは勿論であるが、かかる単セルを複数積層した燃料電池に使用することができる。

#### 【0040】

燃料電池は、燃料を改質して得られた水素を主燃料として、この水素が酸素と反応した時の化学エネルギーを電力として取り出す発電方式を利用するものであり、通常この発電を生ぜしめる単セルを直列に複数重ねたスタック構造とし、スタックの両端に設けた集電板で集電することにより形成されるものである。

#### 【0041】

本発明で得られる燃料電池用セパレータの形状は、特に制限はなく、例えば図 1 に示すような、ガス又は液体の供給路を片面又は両面に有する形状のものが挙げられ、本発明の製造方法はかかる、いわゆるリップ付き形状を有するセパレータの製造に特に好ましい。

また固体高分子型燃料電池セルの構造の一例を図 2 に示す。燃料電池の基本構成単位である単セル 2 は固体高分子電解質膜 3、燃料極 4、酸化剤極 5 からなる電解質膜電極接合体 6 の両面をセパレータ 1 で挟んだ構造を持つ。セパレータの表面に形成された流路 7 は燃料や酸化剤を電極に安定的に供給するのに好適である。また、酸化剤極 5 側に設置したセパレータの酸化剤極 5 の反対面に熱媒として、水を導入することにより燃料電池から熱を取り出すことができる。このように構成された単セル 2 を複数、直列に積層したセルスタック（燃料電池スタック）の一例を図 3 に示す。

#### 【0042】

また、本発明で得られる燃料電池用セパレータは、具体的には、ヒドラジン型、直接メタノール型、アルカリ型、固体高分子型、リン酸型等、種々の形式の燃料電池用セパレータとして使用できる。

#### 【0043】

本発明の燃料電池は、衝撃に対して強くかつ小型化が可能であるため、例えば電気自動車用電源、ポータブル電源、非常用電源等の他、人工衛星、飛行機、宇宙船等各種の移動体用電源として使用できる。

#### 【0044】

##### 【実施例】

以下、本発明を実施例で説明する。

実施例中の通気性試験、導電性評価試験、曲げ試験の測定方法及び評価基準は、以下のとおりである。

#### 【0045】

##### [通気性試験]

後記実施例で得られた平板状成形品を試験片とし、JIS K-7126 に準拠してガス透過率を測定した。

## 【0046】

## [導電性評価試験]

後記実施例で得られた平板状成形品から幅 1 cm、厚み 4 mm、長さ 20 cm の試験片を切り出し、この試験片について、JIS C-2525 に準拠して体積抵抗率を測定した。

## 【0047】

## [曲げ試験]

後記実施例で得られた平板状成形品をそのまま試験片とし、JIS K-6911 に準拠して曲げ強さを測定した。

## 【0048】

## 実施例 1

導電性粉粒体として人造黒鉛を 80 重量部、熱可塑性樹脂繊維としてポリフェニレンスルフィド樹脂繊維（直径  $1\mu$ ）20 重量部を使用して、ジェット開繊法により人造黒鉛をポリフェニレンスルフィド樹脂繊維に担持させたフェルトを、該樹脂の熔融温度（ $280^{\circ}\text{C}$ ）以上である  $300^{\circ}\text{C}$  に加熱した加圧ロールに通して不織布を得た。この不織布をセパレータ形状に合わせた所定の寸法に裁断した後、裁断物を加熱炉中で  $300^{\circ}\text{C}$  に加熱し、ポリフェニレンスルフィド樹脂を充分に熔融させ、直ちに平板状を有する、 $150^{\circ}\text{C}$  に加熱した金型に供給した。次いで、プレス成形機にて  $60\text{MPa}$  で加圧することにより賦型し冷却固化させ、幅 20 cm、厚み 4 mm、長さ 20 cm の平板状成形品を得た。成形サイクルは 35 秒であった。該平板状成形品のガス透過率は  $10^{-5}\text{cm}^3/\text{sec}\cdot\text{cm}^2\cdot\text{atm}$  であり、体積抵抗率は  $5\text{m}\Omega\cdot\text{cm}$  であり、曲げ強さは  $50\text{MPa}$  であった。

## 【0049】

## 実施例 2

不織布の原料として、人造黒鉛 70 重量部、曲状のメソフェーズピッチ系炭素繊維（直径  $10\mu$ 、長さ 3 mm）10 重量部、ポリフェニレンスルフィド樹脂繊維 20 重量部を使用した点を除き、実施例 1 と同様にして操作を行い、平板状成形品を作製した。該平板状成形品のガス透過率は  $10^{-4}\text{cm}^3/\text{sec}\cdot\text{cm}$

2・atmであり、体積抵抗率は $8\text{ m}\Omega\cdot\text{cm}$ であり、曲げ強さは $68\text{ MPa}$ であった。

### 【0050】

#### 実施例 3

不織布の原料として、人造黒鉛 72 重量部、ポリフェニレンスルフィド粉粒体（平均粒径  $25\text{ }\mu$ ）5 重量部、気相成長法炭素繊維（直径  $150\text{ nm}$ 、長さ  $15\text{ }\mu\text{m}$ ）3 重量部、ポリフェニレンスルフィド樹脂繊維 20 重量部を使用した点を除き、実施例 1 と同様にして操作を行い、平板状成形品を作製した。該平板状成形品のガス透過率は $10^{-7}\text{ cm}^3/\text{sec}\cdot\text{cm}^2\cdot\text{atm}$ であり、体積抵抗率は $12\text{ m}\Omega\cdot\text{cm}$ であり、曲げ強さは $75\text{ MPa}$ であった。

### 【0051】

#### 実施例 4

実施例 1 で得られた不織布を、セバレータ形状に合わせた所定の寸法に裁断した後、裁断物を加熱炉中で $300^\circ\text{C}$ に加熱し、ポリフェニレンスルフィド樹脂を熔融させた。一方、ポリフェニレンスルフィド樹脂フィルム（厚さ $1.2\text{ }\mu$ ）を同様に裁断し、 $275^\circ\text{C}$ に加熱した。前者の不織布裁断物と後者のフィルム裁断物を重ね合わせて、平板状を有する、 $150^\circ\text{C}$ に加熱した金型に供給した。次いで、プレス成形機にて $60\text{ MPa}$ で加圧することにより賦型し冷却固化させ、幅 $20\text{ cm}$ 、厚み $4\text{ mm}$ 、長さ $20\text{ cm}$ の平板状成形品を得た。成形サイクルは40秒であった。該平板状成形品のガス透過率は $10^{-6}\text{ cm}^3/\text{sec}\cdot\text{cm}^2\cdot\text{atm}$ であり、体積抵抗率は $7\text{ m}\Omega\cdot\text{cm}$ であり、曲げ強さは $50\text{ MPa}$ であった。

### 【0052】

#### 比較例 1

アクリル繊維とパルプとを用いて作製した抄紙シートに、炭素質粉末及び粉末フェノール樹脂を懸濁させたフェノールメタノール溶液を含浸し、これを積層し、予備焼成し、さらに前記メタノール溶液を含浸した。次いでこれらの操作を繰り返したのち、 $200^\circ\text{C}$ で熱焼成処理を施して実施例 1 と同じ厚さ、幅及び長さを有する平板状成形品を製造した。該平板状成形品の曲げ強さは $10\text{ MPa}$ で脆



いものであった。ガス透過率は  $10^{-3} \text{ cm}^3 / \text{sec} \cdot \text{cm}^2 \cdot \text{atm}$  を越えるものであり、体積抵抗率は  $2 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$  であった。

### 【0053】

#### 比較例 2

ピッチ系炭素繊維 50 重量部とポリフェニレンスルフィド樹脂繊維 50 重量部からなる混合フェルトを、 $300^\circ\text{C}$  に加熱した加圧ロールに通して不織布を得た。この不織布を用いて実施例 1 と同様に操作を行い、実施例 1 と同じ厚さ、幅及び長さを有する平板状成形品を得た。該平板状成形品のガス透過率は  $10^{-3} \text{ cm}^3 / \text{sec} \cdot \text{cm}^2 \cdot \text{atm}$  であり、体積抵抗率は  $100 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$  を越えるものであった。

#### 比較例 3

実施例 1 で用いた人造黒鉛と同様の人造黒鉛 70 重量部とポリフェニレンスルフィド樹脂 30 重量部を、2 軸押出機で熔融混練しシート状成形物を得た。該シート状成形物をセパレータ形状に合わせた所定の寸法に裁断した後、実施例 1 と同様の操作を行い、平板状成形品を作製した。該平板状成形品のガス透過率は  $10^{-7} \text{ cm}^3 / \text{sec} \cdot \text{cm}^2 \cdot \text{atm}$  であり、体積抵抗率は  $100 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$  を越える物であり、曲げ強さは  $50 \text{ MPa}$  であった。

### 【表 1】

#### 表-1

|       | 実施例       |           |           |           | 比較例        |           |           |
|-------|-----------|-----------|-----------|-----------|------------|-----------|-----------|
|       | 1         | 2         | 3         | 4         | 1          | 2         | 3         |
| ガス透過率 | $10^{-5}$ | $10^{-4}$ | $10^{-7}$ | $10^{-6}$ | $>10^{-3}$ | $10^{-3}$ | $10^{-7}$ |
| 体積抵抗率 | 5         | 8         | 12        | 7         | 2          | $>100$    | $>100$    |
| 曲げ強さ  | 50        | 68        | 75        | 50        | 10         | —         | 80        |

## 【0054】

## 【発明の効果】

本発明によれば、ガスシール性と導電性とに優れると共に、従来になく薄肉化が可能でかつ可撓性に優れる燃料電池用セパレータを高い生産性で経済的に製造でき、該製造法で得られたセパレータ及び該セパレータを用いてなる燃料電池を提供できる。

## 【0055】

## 【図面の簡単な説明】


【図1】 本発明の一実施形態に係わる、燃料電池用セパレータを示す斜視図である。

【図2】 本発明の一実施形態に係わる、燃料電池セル構造を示す斜視図である。

【図3】 本発明の一実施形態に係わる、燃料電池スタック構造を示す斜視図である。

## 【符号の説明】

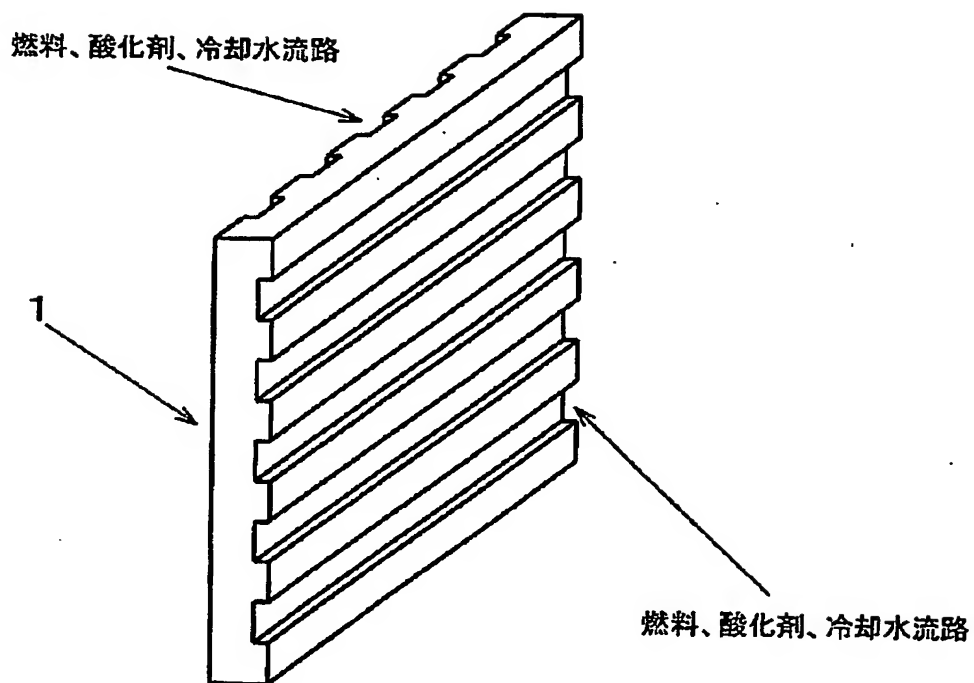
- 1 ……セパレータ
- 2 ……単セル
- 3 ……固体高分子電解質膜
- 4 ……燃料極

- 
- 5 .....酸化剤極
  - 6 .....電解質膜電極接合体
  - 7 .....流路

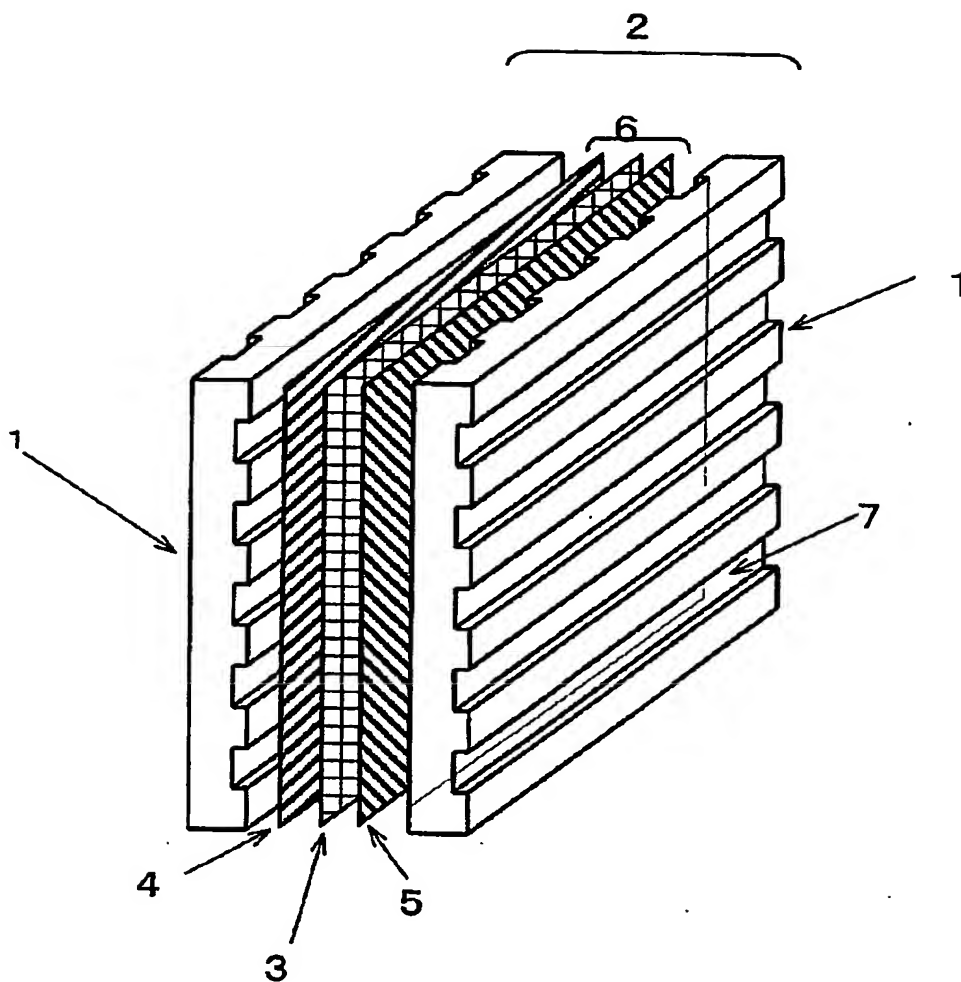
【書類名】

図面

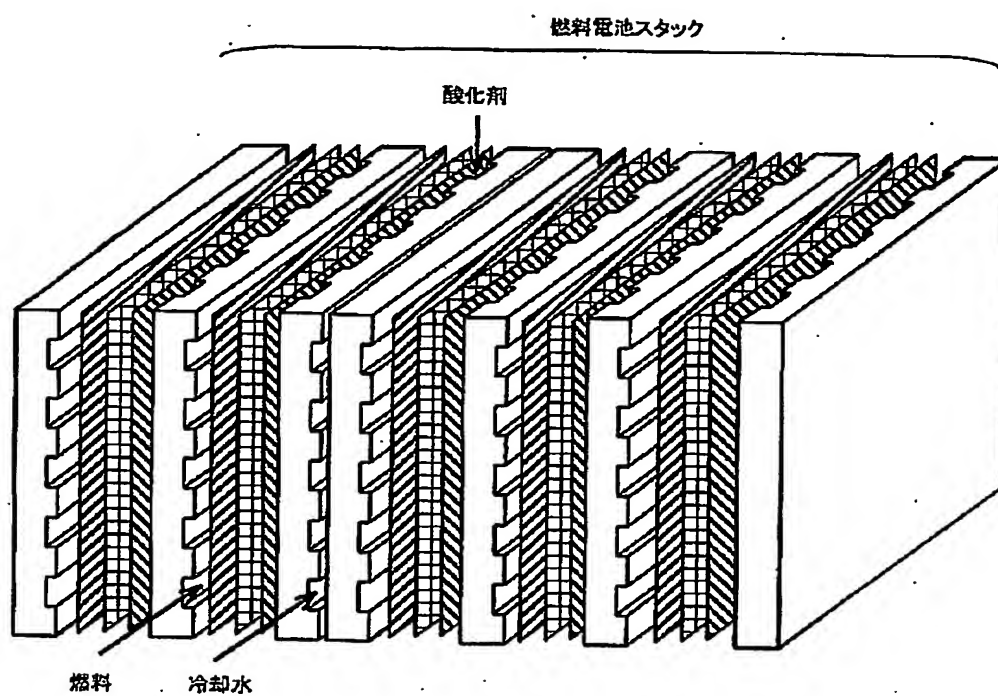
【図 1】



【図2】



【図 3】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 ガスシール性と導電性が優れ、薄肉化が可能でかつ可撓性に優れた燃料電池セパレータを生産性よく製造する方法を提供する。

【解決手段】 導電性粉粒体と熱可塑性樹脂繊維と、必要に応じさらに熱可塑性樹脂粉粒体及び／又は導電性繊維を用いて該導電性粉粒体、又は該導電性粉粒体及び熱可塑性樹脂粉粒体を担持した不織布を形成し、次いで該不織布を成形することを特徴とする燃料電池用セパレータの製造方法及び燃料電池に関する。

【選択図】 なし

認定・付加情報

|         |                |
|---------|----------------|
| 特許出願の番号 | 特願 2003-130170 |
| 受付番号    | 50300760396    |
| 書類名     | 特許願            |
| 担当官     | 第五担当上席 0094    |
| 作成日     | 平成15年 5月 9日    |

<認定情報・付加情報>

|       |             |
|-------|-------------|
| 【提出日】 | 平成15年 5月 8日 |
|-------|-------------|

次頁無



特願2003-130170

ページ： 1/E

出願人履歴情報

識別番号

[000002886]

1. 変更年月日

1990年 8月17日

[変更理由]

新規登録

住所

東京都板橋区坂下3丁目35番58号

氏名

大日本インキ化学工業株式会社